



(12)

EUROPÄISCHE PATENTANMELDUNG

(21) Anmeldenummer: 92111515.0

(51) Int. Cl. 5: C07D 249/14, A01N 43/653

(22) Anmeldetag: 07.07.92

(30) Priorität: 20.07.91 DE 4124150

(43) Veröffentlichungstag der Anmeldung:
27.01.93 Patentblatt 93/04

(84) Benannte Vertragsstaaten:
BE CH DE DK ES FR GB IT LI NL

(71) Anmelder: BAYER AG

W-5090 Leverkusen 1 Bayerwerk(DE)

(72) Erfinder: Findeisen, Kurt, Prof. Dir. Dr.
Dünfelder Strasse 28
W-5090 Leverkusen(DE)
Erfinder: Kuhnt, Dietmar, Dr.
Körnerstrasse 5

W-5090 Leverkusen(DE)
Erfinder: Müller, Klaus-Helmut, Dr.

Bockhakstrasse 55
W-4000 Düsseldorf 13(DE)

Erfinder: König, Klaus, Dr.
Zum Hahnberg 40
W-5068 Odenthal(DE)

Erfinder: Santel, Hans-Joachim, Dr.
Grünstrasse 9a

W-5090 Leverkusen(DE)
Erfinder: Lürssen, Klaus, Dr.

August-Kierspel-Strasse 145

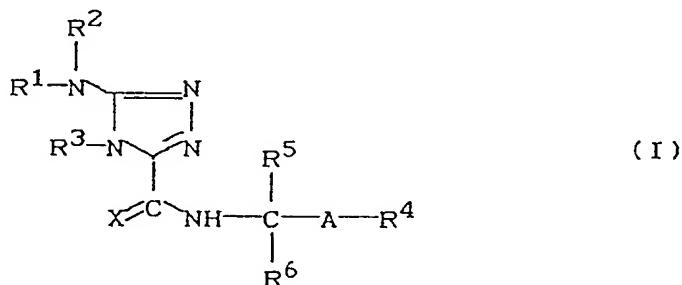
W-5060 Bergisch Gladbach 2(DE)
Erfinder: Schmidt, Robert R., Dr.

Im Waldwinkel 110

W-5060 Bergisch Gladbach 2(DE)

(54) Substituierte Triazole und ihre Verwendung als Herbizide.

(57) Die Erfindung betrifft neue substituierte Triazole der allgemeinen Formel (I)



in welcher

| | |
|----------------|--|
| R ¹ | für Alkyl steht, |
| R ² | für Alkyl steht, |
| R ³ | für Alkyl steht, |
| R ⁴ | für jeweils gegebenenfalls substituiertes Cycloalkyl oder Aryl steht, entweder für Wasserstoff, Alkyl oder Cyano steht und |
| R ⁵ | für Wasserstoff oder Alkyl steht oder |
| R ⁶ | gemeinsam für zweifach verknüpftes Alkandiyl stehen, für einen der Reste -CH ₂ -CH ₂ -; -CH(CH ₃)-CH ₂ -; -CH ₂ -O-; -CH ₂ -S-; -CH ₂ -N(R ⁷)-; -CH=CH- oder -C≡C- steht und |
| X | für Sauerstoff oder Schwefel steht, wobei |

EP 0 524 482 A1

R⁷ für Wasserstoff, Alkyl oder Alkanoyl steht,
wobei jedoch die Verbindung 5-Dimethylamino-4-methyl-3-(4-phenylbut-2-ylaminocarbonyl)-1,2,4-triazol ausgenommen ist, mehrere Verfahren zu ihrer Herstellung und ihre Verwendung als Herbizide.

Die Erfindung betrifft neue substituierte Triazole, mehrere Verfahren zu ihrer Herstellung und ihre Verwendung als Herbizide.

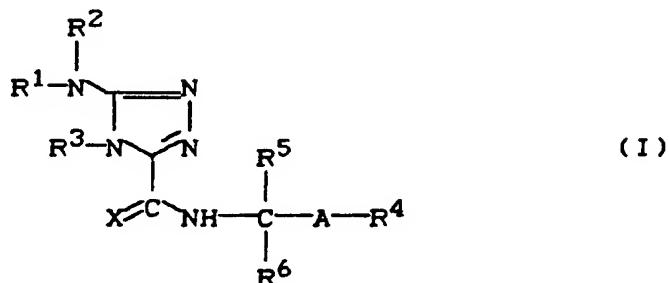
Es ist bekannt, daß bestimmte substituierte Triazole wie beispielsweise die Verbindung 5-Dimethylamino-4-methyl-3-(4-phenylbut-2-ylaminocarbonyl)-1,2,4-triazol herbizide Eigenschaften besitzen (vergleiche z. B. DE 38 09 053).

Die herbizide Wirksamkeit dieser vorbekannten Verbindungen gegenüber Problemunkräutern ist jedoch ebenso wie ihre Verträglichkeit gegenüber wichtigen Kulturpflanzen nicht in allen Anwendungsgebieten völlig zufriedenstellend.

Es wurden neue substituierte Triazole der allgemeinen Formel (I),

10

15



20

in welcher

25

R¹ für Alkyl steht,
 R² für Alkyl steht,
 R³ für Alkyl steht,
 R⁴ für jeweils gegebenenfalls substituiertes Cycloalkyl oder Aryl steht,

30

R⁵ entweder für Wasserstoff, Alkyl oder Cyano steht und

35

R⁶ für Wasserstoff oder Alkyl steht oder

R⁵ und R⁶ gemeinsam für zweifach verknüpftes Alkandiyyl stehen,

A für einen der Reste -CH₂-CH₂-; -CH(CH₃)-CH₂-; -CH₂-O-; -CH₂-S-; -CH₂-N(R⁷)-; -CH=CH- oder -C≡C- steht und

X für Sauerstoff oder Schwefel steht, wobei

40

R⁷ für Wasserstoff, Alkyl oder Alkanoyl steht,

wobei jedoch die Verbindung 5-Dimethylamino-4-methyl-3-(4-phenylbut-2-ylaminocarbonyl)-1,2,4-triazol ausgenommen ist, gefunden.

Die Verbindungen der Formel (I) können gegebenenfalls in Abhängigkeit von der Art der Substituenten

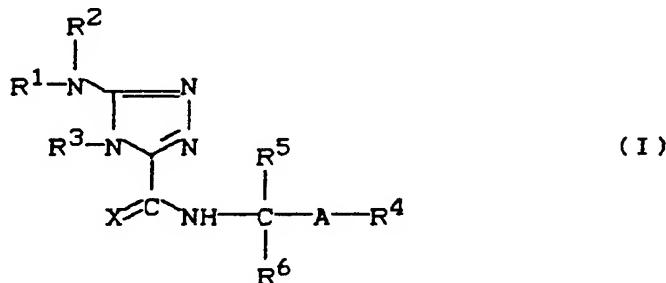
45

als geometrische und/oder optische Isomere oder Isomerengemische unterschiedlicher Zusammensetzung vorliegen. Sowohl die reinen Isomeren als auch die Isomerengemische werden erfindungsgemäß beansprucht.

Weiterhin wurde gefunden, daß man die neuen substituierten Triazole der allgemeinen Formel (I),

50

55



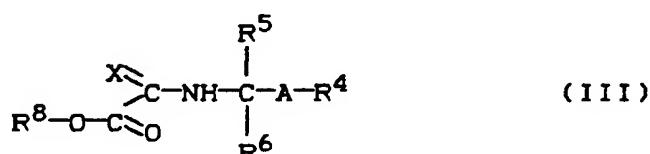
in welcher

R¹ für Alkyl steht,

5 R^2 für Alkyl steht,
 R^3 für Alkyl steht,
 R^4 für jeweils gegebenenfalls substituiertes Cycloalkyl oder Aryl steht,
 R^5 entweder für Wasserstoff, Alkyl oder Cyano steht und
 R^6 für Wasserstoff oder Alkyl steht oder
 10 R^5 und R^6 gemeinsam für zweifach verknüpftes Alkandiyl stehen,
 A für einen der Reste $-\text{CH}_2\text{-CH}_2-$; $-\text{CH}(\text{CH}_3)\text{-CH}_2-$; $-\text{CH}_2\text{-O-}$; $\text{CH}_2\text{-S-}$; $-\text{CH}_2\text{-N}(R^7)-$; $-\text{CH}=\text{CH-}$
 15 X für Sauerstoff oder Schwefel steht, wobei
 10 R^7 für Wasserstoff, Alkyl oder Alkanoyl steht,
 wobei jedoch die Verbindung 5-Dimethylamino-4-methyl-3-(4-phenylbut-2-ylaminocarbonyl)-1,2,4-triazol aus-
 genommen ist,
 erhält, wenn man
 a) Aminoguanidine der Formel (II),
 15



20 in welcher
 R^1 , R^2 und R^3 die oben angegebene Bedeutung haben,
 oder deren Säureadditionssalze mit (Thio)Oxalesteramiden der Formel (III),
 25



35 in welcher
 R^4 , R^5 , R^6 , X und A die oben angegebene Bedeutung haben und
 R^8 für Alkyl steht,
 gegebenenfalls in Gegenwart eines Verdünnungsmittels und gegebenenfalls in Gegenwart eines Reak-
 tionshilfsmittels umsetzt,
 oder wenn man
 40 b) substituierte Triazolyl(thio)carbonsäureester der Formel (IV),



50 in welcher
 R^1 , R^2 , R^3 und X die oben angegebene Bedeutung haben und
 R^9 für Alkyl steht,
 55 mit Aminen der Formel (V),



in welcher

10 R^4 , R^5 , R^6 und A die oben angegebene Bedeutung haben,
gegebenenfalls in Gegenwart eines Verdünnungsmittels umsetzt.

Schließlich wurde gefunden, daß die neuen substituierten Triazole der allgemeinen Formel (I) herbizide Eigenschaften besitzen.

Überraschenderweise zeigen die erfindungsgemäßen substituierten Triazole der allgemeinen Formel (I)

15 eine erheblich bessere herbizide Wirksamkeit gegenüber Problemunkräutern und gleichzeitig eine vergleichbar gute Verträglichkeit gegenüber wichtigen Kulturpflanzen im Vergleich zu den aus dem Stand der Technik bekannten substituierten Triazolen, wie beispielsweise die Verbindung 5-Dimethylamino-4-methyl-3-(4-phenylbut-2-ylaminocarbonyl)-1,2,4-triazol, welche chemisch und wirkungsmäßig naheliegende Verbindungen sind.

20 Die erfindungsgemäßen substituierten Triazole sind durch die Formel (I) allgemein definiert. Bevorzugt sind Verbindungen der Formel (I), bei welchen

R^1 für geradkettiges oder verzweigtes Alkyl mit 1 bis 6 Kohlenstoffatomen steht,

R^2 für geradkettiges oder verzweigtes Alkyl mit 1 bis 6 Kohlenstoffatomen steht,

R^3 für geradkettiges oder verzweigtes Alkyl mit 1 bis 6 Kohlenstoffatomen steht,

25 R^4 für gegebenenfalls einfach oder mehrfach, gleich oder verschieden substituiertes Cycloalkyl mit 3 bis 7 Kohlenstoffatomen steht, wobei als Substituenten infrage kommen: Halogen, Cyano, jeweils geradkettiges oder verzweigtes Alkyl mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen sowie jeweils geradkettiges oder verzweigtes Halogenalkyl mit jeweils 1 bis 4 Kohlenstoffatomen und 1 bis 9 gleichen oder verschiedenen Halogenatomen;

30 außerdem für gegebenenfalls einfach oder mehrfach, gleich oder verschieden substituiertes Aryl mit 6 oder 10 Kohlenstoffatomen steht, wobei als Substituenten infrage kommen: Halogen, Cyano, Nitro, jeweils geradkettiges oder verzweigtes Alkyl, Alkoxy oder Alkylthio mit jeweils 1 bis 4 Kohlenstoffatomen, jeweils geradkettiges oder verzweigtes Halogenalkyl, Halogenalkoxy, Halogenalkylthio mit jeweils 1 bis 4 Kohlenstoffatomen und 1 bis 9 gleichen oder verschiedenen Halogenatomen, jeweils geradkettiges oder verzweigtes

35 Alkoxy carbonyl oder Alkoximinoalkyl mit jeweils 1 bis 4 Kohlenstoffatomen in den einzelnen Alkylteilen, Dialkylamino mit jeweils 1 bis 4 Kohlenstoffatomen in den einzelnen geradkettigen oder verzweigten Alkylteilen, N-Alkanoylamino mit 1 bis 5 Kohlenstoffatomen im geradkettigen oder verzweigten Alkanoylteil, gegebenenfalls einfach oder mehrfach, gleich oder verschieden durch Halogen substituiertes, zweifach verknüpftes Dioxyal-

40 kylen mit 1 bis 3 Kohlenstoffatomen sowie gegebenenfalls einfach oder mehrfach, gleich oder verschieden durch Halogen und/oder geradkettiges oder verzweigtes Alkyl mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen substituiertes Phenyl, Phenoxy, α -Naphthyl oder β -Naphthyl;

R^5 entweder für Wasserstoff, für geradkettiges oder verzweigtes Alkyl mit 1 bis 6 Kohlenstoffatomen oder für Cyano steht und

45 R^6 für Wasserstoff oder für geradkettiges oder verzweigtes Alkyl mit 1 bis 6 Kohlenstoffatomen steht oder

R^5 und R^6 gemeinsam für zweifach verknüpftes Alkandiyl mit 2 bis 9 Kohlenstoffatomen stehen,

50 A für einen Rest der Formel $-\text{CH}_2-\text{CH}_2-$; $-\text{CH}(\text{CH}_3)-\text{CH}_2-$; $-\text{CH}_2-\text{O}-$; $-\text{CH}_2-\text{S}-$; $-\text{CH}_2-\text{N}(\text{R}^7)-$; $-\text{CH}=\text{CH}-$ oder $-\text{C}\equiv\text{C}-$ steht und

X für Sauerstoff oder Schwefel steht, wobei

R^7 für Wasserstoff, für geradkettiges oder verzweigtes Alkyl mit 1 bis 6 Kohlenstoffatomen oder für geradkettiges oder verzweigtes Alkanoyl mit 1 bis 7 Kohlenstoffatomen steht,

wobei jedoch die Verbindung 5-Dimethylamino-4-methyl-3-(4-phenylbut-2-ylaminocarbonyl)-1,2,4-triazol ausgenommen ist.

Besonders bevorzugt sind Verbindungen der Formel (I), bei welchen

R^1 für geradkettiges oder verzweigtes Alkyl mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen steht,

R^2 für geradkettiges oder verzweigtes Alkyl mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen steht,

| | |
|-----------------|---|
| R^3 | für geradkettiges oder verzweigtes Alkyl mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen steht, für jeweils gegebenenfalls ein- bis fünffach, gleich oder verschieden substituiertes Cyclopropyl, Cyclobutyl, Cyclopentyl oder Cyclohexyl steht, wobei als Substituenten jeweils infrage kommen: Fluor, Chlor, Brom, Cyano, Methyl, Ethyl, n- oder i-Propyl, Chlormethyl, Dichlormethyl, Trichlormethyl, Difluormethyl oder Trifluormethyl; außerdem für jeweils gegebenenfalls ein- bis dreifach, gleich oder verschieden substituiertes Phenyl, α -Naphthyl, β -Naphthyl oder Indanyl, steht, wobei als Substituenten jeweils infrage kommen: Fluor, Chlor, Brom, Cyano, Nitro, Methyl, Ethyl, n- oder i-Propyl, n-, i-, s oder t-Butyl, Methoxy, Ethoxy, n- oder i-Propoxy, n-, i-, s- oder t-Butoxy, Methylthio, Ethylthio, Difluormethyl, Trifluormethyl, Difluormethoxy, Trifluormethoxy, Difluormethylthio, Trifluormethylthio, Dimethylamino, Diethylamino, N-Acetamido, Dioxymethylen, Difluordioxymethylen, Dioxyethylen, Trifluordioxymethylen, Tetrafluordioxymethylen, Methoxycarbonyl, Ethoxycarbonyl, Propoxycarbonyl, Methoximinomethyl, Methoximinoethyl, Ethoximinomethyl, Ethoximinoethyl oder jeweils gegebenenfalls ein- bis dreifach, gleich oder verschieden durch Fluor, Chlor, Brom, Methyl, Ethyl, Methoxy und/oder Ethoxy substituiertes Phenyl, Phenoxy, α -Naphthyl oder β -Naphthyl, |
| R^5 | entweder für Wasserstoff, für geradkettiges oder verzweigtes Alkyl mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen oder für Cyano steht und |
| R^6 | für Wasserstoff oder für geradkettiges oder verzweigtes Alkyl mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen steht oder |
| R^5 und R^6 | gemeinsam für zweifach verknüpftes Alkandiyl mit 4 bis 9 Kohlenstoffatomen stehen, |
| A | für einen der Reste $-\text{CH}_2-\text{CH}_2-$; $-\text{CH}(\text{CH}_3)-\text{CH}_2-$; $-\text{CH}_2-\text{O}-$; $-\text{CH}_2-\text{S}-$; $-\text{CH}_2-\text{N}(\text{R}^7)-$; $-\text{CH}=\text{CH}$ oder $-\text{C}\equiv\text{C}-$ steht und |
| X | für Sauerstoff oder Schwefel steht, wobei |
| R^7 | für Wasserstoff, für geradkettiges oder verzweigtes Alkyl mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen oder für geradkettiges oder verzweigtes Alkanoyl mit 1 bis 5 Kohlenstoffatomen steht, |

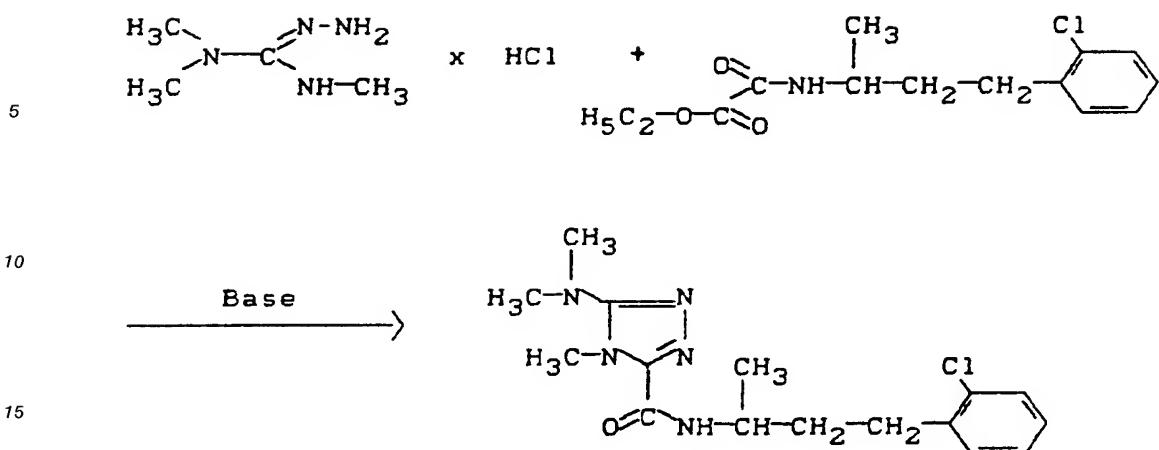
wobei jedoch die Verbindung 5-Dimethylamino-4-methyl-3-(4-phenylbut-2-ylaminocarbonyl)-1,2,4-triazol ausgenommen ist.

Ganz besonders bevorzugt sind Verbindungen der Formel (I), bei welchen

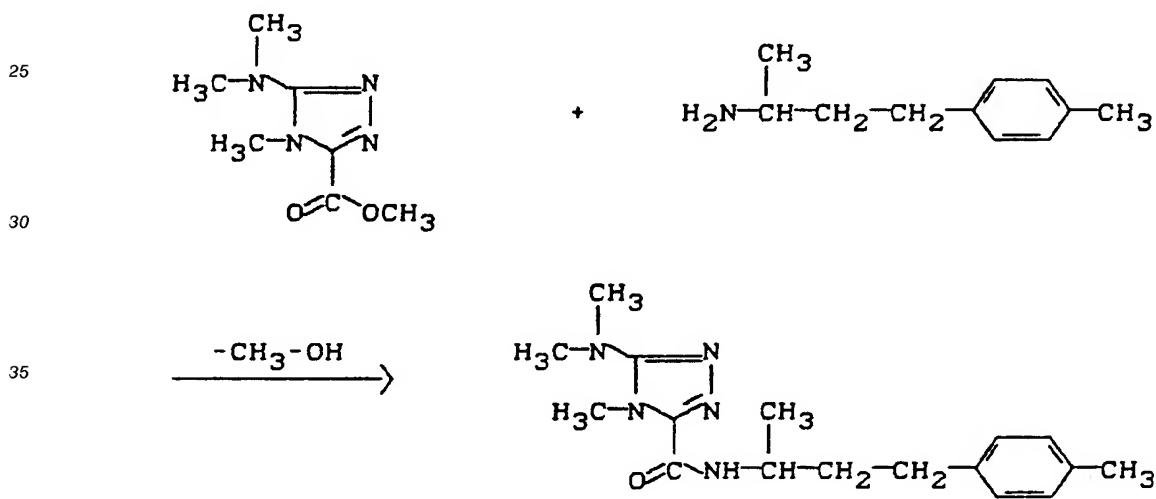
30 R¹ für Methyl steht,
 R² für Methyl oder Ethyl steht,
 R³ für Methyl oder Ethyl steht,
 R⁴ für gegebenenfalls einfach oder zweifach, gleich oder verschieden durch Methyl, Ethyl und/oder Trifluormethyl substituiertes Cyclohexyl oder für gegebenenfalls ein- bis dreifach, gleich oder verschieden substituiertes Phenyl steht, wobei als Substituenten infrage kommen:
 35 Fluor, Chlor, Brom, Cyano, Nitro, Methyl, Ethyl, n- oder i-Propyl, n-, i-, s- oder t-Butyl, Methoxy, Ethoxy, n- oder i-Propoxy, n-, i-, s- oder t-Butoxy, Methylthio, Ethylthio, Difluormethyl, Trifluormethyl, Difluormethoxy, Trifluormethoxy, Difluormethylthio, Trifluormethylthio, Dimethylamino, Diethylamino, N-Acetamido, Dioxymethylen, Difluordioxymethylen, Dioxoethylen, Trifluordioxoethylen, Tetrafluordioxoethylen, Methoxycarbonyl, Ethoxycarbonyl, Propoxycarbonyl, Methoximinomethyl, Methoximinooethyl, Ethoximinomethyl, Ethoximinoethyl oder jeweils gegebenenfalls ein- bis dreifach, gleich oder verschieden durch Fluor, Chlor, Brom, Methyl, Ethyl, Methoxy und/oder Ethoxy substituiertes Phenyl, Phenoxy, α -Naphthyl oder β -Naphthyl,
 40 R⁵ für Wasserstoff, Methyl, Ethyl oder Cyano steht,
 R⁶ für Methyl, Ethyl, n- oder i-Propyl steht,
 A für einen der Reste -CH₂-CH₂-; -CH(CH₃)-CH₂-; -CH₂-O-; -CH₂-S-; -CH₂-N(R⁷)-; -CH=CH- oder -C≡C- steht und
 X für Sauerstoff steht, wobei
 R⁷ für Wasserstoff, Methyl, Ethyl, n- oder i-Propyl, Acetyl oder Propionyl steht,
 50 wobei jedoch die Verbindung 5-Dimethylamino-4-methyl-3-(4-phenylbut-2-ylaminocarbonyl)-1,2,4-triazol ausgenommen ist.

Im einzelnen sei auf die bei den Herstellungsbeispielen aufgeführten Verbindungen verwiesen.

55 Verwendet man beispielsweise 1-Amino-2,2,3-trimethylguanidinium-Hydrochlorid und Oxalsäuremonoethylester-[1-(2-chlorphenyl)-but-3-ylamid] als Ausgangsstoffe, so läßt sich der Reaktionsablauf des erfindungsgemäßen Verfahrens (a) durch das folgende Formelschema darstellen:



20 Verwendet man beispielsweise 5-Dimethylamino-3-methyl-1,2,4-triazol-3-yl-carbonsäuremethylester und 4-(4-Methylphenyl)-but-2-ylamin als Ausgangsstoffe, so lässt sich der Reaktionsablauf des erfindungsgemäßen Verfahrens (b) durch das folgende Formelschema darstellen:



Die zur Durchführung des erfindungsgemäßen Verfahrens (a) als Ausgangsstoffe benötigten Aminoguanidine sind durch die Formel (II) allgemein definiert. In dieser Formel (II) stehen R¹, R² und R³ vorzugsweise für diejenigen Reste, die bereits im Zusammenhang mit der Beschreibung der erfindungsgemäßen Verbindungen der Formel (I) als bevorzugt für diese Substituenten genannt wurden.

45 gen der Formel (I) als bevorzugt für diese Substituenten genannt wurden.
 Die Aminoguanidine der Formel (II) und deren Säureadditionssalze, wie insbesondere deren Hydrochloride oder Hydrobromide sind bekannt (vergleiche z. B. J. Org. Chem., 19, 1807 [1954]; Bull. Soc. Chim Fr. 1975, 1649; US 2,845,458; DE 38 09 053).

Die zur Durchführung des erfindungsgemäßen Verfahrens (a) weiterhin als Ausgangsstoffe benötigten (Thio)Oxalesteramide sind durch die Formel (III) allgemein definiert. In dieser Formel (III) stehen R^4 , R^5 , R^6 , 50 X und A vorzugsweise für diejenigen Reste, die bereits im Zusammenhang mit der Beschreibung der erfindungsgemäßen Verbindungen der Formel (I) als bevorzugt für diese Substituenten genannt wurden. R^8 steht vorzugsweise für geradkettiges oder verzweigtes Alkyl mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen, insbesondere für Methyl oder Ethyl.

55 Die (Thio)Oxalesteramide der Formel (III) sind bekannt oder erhältlich in Analogie zu bekannten Verfahren (vergleiche z. B. EP 273 328; Ind. J. Chem. Sect. B, 24B, 940-947 [1985]; Acta Pharm. Suec., 20, 349-364 [1983] bzw. CA 100:174345; An. Quim. 73, 1177-1183 [1977] bzw. CA 89:129148; Bull. Soc. Chim. Belg. 85, 421-425 [1976]; Tetrahedron Lett. 1976, 2289-2290; Bull. Chem. Soc. Jpn. 60, 609-612 [1987] oder DE 38

09 053).

Die zur Durchführung des erfindungsgemäßen Verfahrens (b) als Edukte erforderlichen substituierten Triazolyl(thio)carbonsäureester sind durch die Formel (IV) allgemein definiert. In dieser Formel (IV) stehen R¹, R², R³ und X vorzugsweise für diejenigen Reste, die bereits im Zusammenhang mit der Beschreibung der erfindungsgemäßen Stoffe der Formel (I) als bevorzugt für diese Substituenten genannt wurden. R⁹ steht vorzugsweise für geradkettiges oder verzweigtes Alkyl mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen, insbesondere für Methyl oder Ethyl.

Die substituierten (Thio)Oxalesteramide der Formel (IV) sind bekannt oder erhältlich in Analogie zu bekannten Verfahren (vergleiche z. B. Houben-Weyl, "Methoden der organischen Chemie", Band VIII, Seite 10 659, Thieme Verlag Stuttgart; US 2.857.390; Compt. Rend. Acad. Sci. 230, 848, [1950]; GB 15 78 719; DE 28 19 878; DE 12 27 451; DE 38 09 052).

Die zur Durchführung des erfindungsgemäßen Verfahrens (b) weiterhin als Edukte erforderlichen Amine sind durch die Formel (V) allgemein definiert. In dieser Formel (V) stehen R⁴, R⁵, R⁶ und A vorzugsweise für diejenigen Reste, die bereits im Zusammenhang mit der Beschreibung der erfindungsgemäßen Stoffe 15 der Formel (I) als bevorzugt für diese Substituenten genannt wurden.

Die Amine der Formel (V) sind bekannt oder erhältlich in Analogie zu bekannten Verfahren (vergleiche z. B. EP 273 328; Ind. J Chem. Sect. B, 24B, 940-947 [1985]; Acta Pharm. Suec. 20, 349-364 [1983] bzw. CA 100:174345; An. Quim. 73, 1177-1183 [1977] bzw. CA 89:129148; Bull. Soc. Chim. Belg. 85, 421-425 [1976]; Tetrahedron Lett. 1976, 2289-2290; Bull. Chem. Soc. Jpn. 60, 609-612 [1987]).

20 Als Verdünnungsmittel zur Durchführung des erfindungsgemäßen Verfahrens (a) kommen inerte organische Lösungsmittel infrage. Hierzu gehören insbesondere aliphatische, alicyclische oder aromatische, gegebenenfalls halogenierte Kohlenwasserstoffe wie beispielsweise Benzin, Benzol, Toluol, Xylol, Chlorbenzol, Dichlorbenzol, Petrolether, Hexan, Cyclohexan, Dichlormethan, Chloroform oder Tetrachlorkohlenstoff; Ether wie Diethylether, Diisopropylether, Dioxan, Tetrahydrofuran oder Ethylenglykoldimethyl- oder -diethylether; Nitrile wie Acetonitril, Propionitril oder Benzonitril; Amide wie N,N-Dimethylformamid, N,N-Dimethylacetamid, N-Methylformanilid, N-Methylpyrrolidon oder Hexamethylphosphorsäuretriamid; Ester wie Essigsäuremethylester oder Essigsäureethylester oder Alkohole, wie Methanol, Ethanol, n- oder i-Propanol, n-, i-, s- oder t-Butanol, Ethylenglykolmonomethylether oder Ethylenglykolmonoethylether.

Das erfindungsgemäße Verfahren (a) wird vorzugsweise in Gegenwart eines geeigneten Reaktionshilfsmittels durchgeführt. Als solche kommen alle üblichen anorganischen oder organischen Basen infrage. Hierzu gehören beispielsweise Erdalkali- oder Alkalimetallhydride, -hydroxide, -amide, -alkoholate, -acetate, -carbonate oder -hydrogencarbonate, wie beispielsweise Natriumhydrid, Natriumamid, Natriummethylat, Natriumethylat, Kalium-tert-butylat, Natriumhydroxid, Kaliumhydroxid, Ammoniumhydroxid, Natriumacetat, Kaliumacetat, Calciumacetat, Ammoniumacetat, Natriumcarbonat, Kaliumcarbonat, Kaliumhydrogencarbonat, 35 Natriumhydrogencarbonat oder Ammoniumcarbonat sowie tertiäre Amine wie Trimethylamin, Triethylamin, Tributylamin, N,N-Dimethylanilin, Pyridin, Piperidin, N-Methylpiperidin, N,N-Dimethylaminopyridin, Diazabicyclooctan (DABCO), Diazabicyclononen (DBN) oder Diazabicycloundecen (DBU).

Die Reaktionstemperaturen können bei der Durchführung des erfindungsgemäßen Verfahrens (a) in einem größeren Bereich variiert werden. Im allgemeinen arbeitet man bei Temperaturen zwischen +30 °C 40 und +150 °C, vorzugsweise bei Temperaturen zwischen +50 °C und +80 °C.

Zur Durchführung des erfindungsgemäßen Verfahrens (a) setzt man pro Mol Aminoguanidin der Formel (II) bzw. eines entsprechenden Säureadditionssalzes im allgemeinen 1,0 bis 1,5 Mol, vorzugsweise 1,0 bis 1,2 Mol substituiertes (Thio)Oxalesteramid der Formel (III) und gegebenenfalls 1,0 bis 5,0 Mol, vorzugsweise 1,0 bis 2,5 Mol Base als Reaktionshilfsmittel ein. Die Reaktionsdurchführung, Aufarbeitung und Isolierung 45 der Reaktionsprodukte erfolgt nach bekannten Verfahren (vergleiche hierzu beispielsweise DE 38 09 053 oder die Herstellungsbeispiele).

Als Verdünnungsmittel zur Durchführung des erfindungsgemäßen Verfahrens (b) kommen inerte organische Lösungsmittel infrage. Hierzu gehören insbesondere aliphatische, alicyclische oder aromatische, gegebenenfalls halogenierte Kohlenwasserstoffe, wie beispielsweise Benzin, Benzol, Toluol, Xylol, Chlorbenzol, Dichlorbenzol, Petrolether, Hexan, Cyclohexan, Dichlormethan, Chloroform oder Tetrachlorkohlenstoff; Ether, wie Diethylether, Diisopropylether, Dioxan, Tetrahydrofuran oder Ethylenglykoldimethyl- oder -diethylether; Nitrile, wie Acetonitril, Propionitril oder Benzonitril; Amide, wie N,N-Dimethylformamid, N,N-Dimethylacetamid, N-Methylformanilid, N-Methylpyrrolidon oder Hexamethylphosphorsäuretriamid; Ester, wie Essigsäuremethylester oder Essigsäureethylester.

55 Die Reaktionstemperaturen können bei der Durchführung des erfindungsgemäßen Verfahrens (b) in einem größeren Bereich variiert werden. Im allgemeinen arbeitet man bei Temperaturen zwischen +50 °C und +250 °C, vorzugsweise bei Temperaturen zwischen +100 °C und +220 °C.

Das erfindungsgemäße Verfahren (b) wird üblicherweise unter Normaldruck durchgeführt. Es ist jedoch

auch möglich, unter erhöhtem Durck zu arbeiten; in diesem Fall arbeitet man vorzugsweise in Druckbereichen zwischen 1,0 und 50,0 bar, insbesondere in Druckbereichen zwischen 3,0 und 20,0 bar.

Zur Durchführung des erfindungsgemäßen Verfahrens (b) setzt man pro Mol substituiertem Triazolyl-(thio)carbonsäureester der Formel (IV) im allgemeinen 1,0 bis 1,5 Mol, vorzugsweise 1,0 bis 1,2 Mol Amin 5 der Formel (V) ein.

Die Reaktionsdurchführung, Aufarbeitung und Isolierung der Reaktionsprodukte erfolgt nach bekannten Verfahren (vergleiche hierzu beispielsweise DE 38 09 053 oder die Herstellungsbeispiele).

Die Reinigung der Endprodukte der Formel (I) erfolgt mit Hilfe üblicher Verfahren, beispielsweise durch Säulenchromatographie oder durch Umkristallisieren. Die Charakterisierung erfolgt mit Hilfe des Schmelzpunktes oder bei nicht kristallisierenden Verbindungen mit Hilfe der Protonen-Kernresonanzspektroskopie (H-NMR). 10

Die erfindungsgemäßen Wirkstoffe können als Defoliants, Desiccants, Krautötungsmittel und insbesondere als Unkrautvernichtungsmittel verwendet werden. Unter Unkraut im weitesten Sinne sind alle Pflanzen zu verstehen, die an Orten aufwachsen, wo sie unerwünscht sind. Ob die erfindungsgemäßen 15 Stoffe als totale oder selektive Herbizide wirken, hängt im wesentlichen von der angewendeten Menge ab.

Die erfindungsgemäßen Wirkstoffe können z.B. bei den folgenden Pflanzen verwendet werden:

Dikotyle Unkräuter der Gattungen: Sinapis, Lepidium, Galium, Stellaria, Matricaria, Anthemis, Galinsoga, Chenopodium, Urtica, Senecio, Amaranthus, Portulaca, Xanthium, Convolvulus, Ipomoea, Polygonum, Sesbania, Ambrosia, Cirsium, Carduus, Sonchus, Solanum, Rorippa, Rotala, Lindernia, Lamium, Veronica, 20 Abutilon, Emex, Datura, Viola, Galeopsis, Papaver, Centaurea, Trifolium, Ranunculus, Taraxacum.

Dikotyle Kulturen der Gattungen: Gossypium, Glycine, Beta, Daucus, Phaseolus, Pisum, Solanum, Linum, Ipomoea, Vicia, Nicotiana, Lycopersicon, Arachis, Brassica, Lactuca, Cucumis, Cucurbita.

Monokotyle Unkräuter der Gattungen: Echinochloa, Setaria, Panicum, Digitaria, Phleum, Poa, Festuca, Eleusine, Brachiaria, Lolium, Bromus, Avena, Cyperus, Sorghum, Agropyron, Cynodon, Monochoria, Fimbri- 25 stylis, Sagittaria, Eleocharis, Scirpus, Paspalum, Ischaemum, Sphenoclea, Dactyloctenium, Agrostis, Alopecurus, Apera.

Monokotyle Kulturen der Gattungen: Oryza, Zea, Triticum, Hordeum, Avena, Secale, Sorghum, Panicum, Saccharum, Ananas, Asparagus, Allium.

Die Verwendung der erfindungsgemäßen Wirkstoffe ist jedoch keineswegs auf diese Gattungen beschränkt, 30 sondern erstreckt sich in gleicher Weise auch auf andere Pflanzen.

Die Verbindungen eignen sich in Abhängigkeit von der Konzentration zur Totalunkrautbekämpfung z.B. auf Industrie- und Gleisanlagen und auf Wegen und Plätzen mit und ohne Baumbewuchs. Ebenso können die Verbindungen zur Unkrautbekämpfung in Dauerkulturen, z.B. Forst, Ziergehölz-, Obst-, Wein-, Citrus-, Nuß-, Bananen-, Kaffee-, Tee-, Gummi-, Ölpalm-, Kakao-, Beerenfrucht- und Hopfenanlagen, auf Zier- und 35 Sportrasen und Weideflächen und zur selektiven Unkrautbekämpfung in einjährigen Kulturen eingesetzt werden.

Dabei lassen sich die erfindungsgemäßen Wirkstoffe mit besonders gutem Erfolg zur Bekämpfung von dikotylen Unkräutern in monokotylen Kulturen wie beispielsweise Weizen oder Mais einsetzen.

Die Wirkstoffe können in die üblichen Formulierungen überführt werden, wie Lösungen, Emulsionen, 40 Spritzpulver, Suspensionen, Pulver, Stäubemittel, Pasten, lösliche Pulver, Granulate, Suspensions-Emulsions-Konzentrate, Wirkstoff-imprägnierte Natur- und synthetische Stoffe sowie Feinstverkapselungen in polymeren Stoffen.

Diese Formulierungen werden in bekannter Weise hergestellt, z. B. durch Vermischen der Wirkstoffe mit Streckmitteln, also flüssigen Lösungsmitteln und/oder festen Trägerstoffen, gegebenenfalls unter Verwendung von oberflächenaktiven Mitteln, also Emulgiermitteln und/oder Dispergiermitteln und/oder schaumerzeugenden Mitteln. 45

Im Falle der Benutzung von Wasser als Streckmittel können z.B. auch organische Lösungsmittel als Hilfslösungsmittel verwendet werden. Als flüssige Lösungsmittel kommen im wesentlichen infrage: Aromaten, wie Xylool, Toluol, oder Alkylnaphthaline, chlorierte Aromaten und chlorierte aliphatische Kohlenwasserstoffe, wie Chlorbenzole, Chlorethylene oder Methylenchlorid, aliphatische Kohlenwasserstoffe, wie Cyclohexan oder Paraffine, z.B. Erdölfraktionen, mineralische und pflanzliche Öle, Alkohole, wie Butanol oder Glykol sowie deren Ether und Ester, Ketone wie Aceton, Methylethylketon, Methylisobutylketon oder Cyclohexanon, stark polare Lösungsmittel, wie Dimethylformamid und Dimethylsulfoxid, sowie Wasser. 50

Als feste Trägerstoffe kommen infrage: 55 z.B. Ammoniumsalze und natürliche Gesteinsmehle, wie Kaoline, Tonerden, Talkum, Kreide, Quarz, Attapulgit, Montmorillonit oder Diatomeenerde und synthetische Gesteinsmehle, wie hochdisperse Kieselsäure, Aluminiumoxid und Silikate; als feste Trägerstoffe für Granulate kommen infrage: z.B. gebrochene und fraktionierte natürliche Gesteine wie Calcit, Marmor, Bims, Sepiolith, Dolomit sowie synthetische Granulate

aus anorganischen und organischen Mehlen sowie Granulate aus organischem Material wie Sägemehl, Kokosnußschalen, Maiskolben und Tabakstengeln; als Emulgier- und/oder schaumerzeugende Mittel kommen infrage: z.B. nichtionogene und anionische Emulgatoren, wie Polyoxyethylen-Fettsäure-Ester, Polyoxyethylen-Fettalkohol-Ether, z.B. Alkylaryl-polyglykolether, Alkylsulfonate, Alkylsulfate, Arylsulfonate sowie Eiweißhydrolysat; als Dispergiermittel kommen infrage: z.B. Lignin-Sulfitablaugen und Methylcellulose.

Es können in den Formulierungen Haftmittel wie Carboxymethylcellulose, natürliche und synthetische pulvrig, körnige oder latexförmige Polymere verwendet werden, wie Gummiarabicum, Polyvinylalkohol, Polyvinylacetat, sowie natürliche Phospholipide, wie Kephaline und Lecithine und synthetische Phospholipide. Weitere Additive können mineralische und vegetabile Öle sein.

Es können Farbstoffe wie anorganische Pigmente, z.B. Eisenoxid, Titanoxid, Ferrocyanblau und organische Farbstoffe, wie Alizarin-, Azo- und Metallphthalocyaninfarbstoffe und Spurennährstoffe wie Salze von Eisen, Mangan, Bor, Kupfer, Kobalt, Molybdän und Zink verwendet werden.

Die Formulierungen enthalten im allgemeinen zwischen 0,1 und 95 Gewichtsprozent Wirkstoff, vorzugsweise zwischen 0,5 und 90 %.

Die erfindungsgemäßen Wirkstoffe können als solche oder in ihren Formulierungen auch in Mischung mit bekannten Herbiziden zur Unkrautbekämpfung Verwendung finden, wobei Fertigformulierungen oder Tankmischungen möglich sind.

Für die Mischungen kommen bekannte Herbizide wie z.B. 1-Amino-6-ethylthio-3-(2,2-dimethylpropyl)-1,3,5-triazin-2,4(1H,3H)-dion (AMETHYDIONE) oder N-(2-Benzthiazolyl)-N,N'-dimethyl-harnstoff (METABENZTHIAZURON) zur Unkrautbekämpfung in Getreide; 4-Amino-3-methyl-6-phenyl-1,2,4-triazin-5-(4H)-on (METAMITRON) zur Unkrautbekämpfung in Zuckerrüben und 4-Amino-6-(1,1-dimethylethyl)-3-methylthio-1,2,4-triazin-5(4H)-on (METRIBUZIN) zur Unkrautbekämpfung in Sojabohnen, infrage. Auch Mischungen mit 2,4-Dichlorphenoxyessigsäure (2,4-D); 4-(2,4-Dichlorphenoxy)-buttersäure (2,4-DB); 2,4-Dichlorphenoxypropionsäure (2,4-DP); 5-(2-Chlor-4-trifluormethyl-phenoxy)-2-nitro-benzoësäure (ACIFLUORFEN); Chloressigsäure-N-(methoxymethyl)-2,6-diethylanilid (ALACHLOR); Methyl-6,6-dimethyl-2,4-dioxo-3-[1-(2-propenylxyamino)-butyriden]-cyclohexancarbonsäure (ALLOXYDIM); 4-Aminobenzolsulfonyl-methylcarbamat (ASULAM); 2-Chlor-4-ethylamino-6-isopropylamino-1,3,5-triazin (ATRAZIN); 2-[[[[[(4,6-Dimethoxy-pyrimidin-2-yl)-amino]-carbonyl]-amino]-sulfonyl]-methyl]-benzoësäuremethylester (BENSULFURON); 3-Isopropyl-2,1,3-benzothiadiazin-4-on-2,2-dioxid (BENTAZON); Methyl-5-(2,4-dichlorphenoxy)-2-nitrobenzoat (BIFENOX); 3,5-Dibrom-4-hydroxy-benzonitril (BROMOXYNIL); N-(Butoxymethyl)-2-chlor-N-(2,6-diethylphenyl)-acetamid (BUTACHLOR); N-(Butoxymethyl)-2-chlor-N-(2,6-diethylphenyl)-acetamid (BUTACHLOR); 5-Amino-4-chlor-2-phenyl-2,3-dihydro-3-oxy-pyridazin (CHLORIDAZON); Ethyl-2-[(4-chlor-6-methoxy-2-pyrimidinyl)-aminocarbonyl]-aminosulfonyl]-benzoat (CHLORIMURON); N-(3-Chlorphenoxy)-isopropylcarbamat (CHLORPROPHAM); 2-Chlor-N-[(4-methoxy-6-methyl-1,3,5-triazin-2-yl)-amino]-carbonyl]-benzolsulfonamid (CHLORSULFURON); N,N-Dimethyl-N'-(3-chlor-4-methylphenyl)-harnstoff (CHLORTOLURON); exo-1-Methyl-4-(1-methylethyl)-2-(2-methylphenyl-methoxy)-7-oxabicyclo-(2,2,1)-heptan (CINMETHYLIN); 3,6-Dichlor-2-pyridincarbonsäure (CLOPYRALID); 2-Chlor-4-ethylamino-6-(3-cyanopropylamino)-1,3,5-triazin (CYANAZIN); N,S-Diethyl-N-cyclohexyl-thiolcarbamat (CYCLOATE); 2-[1-(Ethoximino)-butyl]-3-hydroxy-5-[tetrahydro-(2H)-thiopyran-3-yl]-2-cyclohexen-1-on (CYCLOXYDIM); 2,6-Dichlorbenzonitril (DICHLOBENIL); 2-[4-(2,4-Dichlorphenoxy)-phenoxy]-propionsäure, deren Methyl- oder deren Ethylester (DICLOFOP); N,N-Di-n-propyl-thiocarbamidsäure-S-ethylester (EPTAME); 4-Amino-6-t-butyl-3-ethylthio-1,2,4-triazin-5(4H)-on (ETHIOZIN); 2-{4-[(6-Chlor-2-benzoxazolyl)-oxy]-phenoxy}-propansäure, deren Methyl- oder deren Ethylester (FENOXAPROP); 2-[4-(5-Trifluormethyl-2-pyridyloxy)-phenoxy]-propansäure oder deren Butylester (FLUAZIFOP); N,N-Dimethyl-N'-(3-trifluormethylphenyl)-harnstoff (FLUOMETURON); 1-Methyl-3-phenyl-5-(3-trifluormethylphenyl)-4-pyridon (FLURIDONE); [(4-Amino-3,5-dichlor-6-fluor-2-pyridinyl)-oxy]-essigsäure bzw. deren 1-Methylheptylester (FLUROXYPYR); 5-(2-Chlor-4-trifluormethyl-phenoxy)-N-methylsulfonyl-2-nitrobenzamid (FOMESAFEN); N-Phosphonomethyl-glycin (GLYPHOSATE); 2-{4-[(3-Chlor-5-(trifluormethyl)-2-pyridinyl)-oxy]-phenoxy}-propansäure bzw. deren Ethylester (HALOXYFOP); 3-Cyclohexyl-6-dimethylamino-1-methyl-1,3,5-triazin-2,4-dion (HEXAZINONE); Methyl-2-[4,5-dihydro-4-methyl-4-(1-methylethyl)-5-oxo-1H-imidazol-2-yl]-4(5)-methylbenzoat (IMAZAMETHABENZ); 2-(4,5-Dihydro-4-methyl-4-isopropyl-5-oxo-1H-imidazol-2-yl)-pyridin-3-carbonsäure (IMAZAPYR); 2-[5-Methyl-5-(1-methylethyl)-4-oxo-2-imidazolin-2-yl]-3-chinolincarbonsäure (IMAZAQUIN); 2-[4,5-Dihydro-4-methyl-4-isopropyl-5-oxo-(1H)-imidazol-2-yl]-5-ethyl-pyridin-3-carbonsäure (IMAZETHAPYR); 3,5-Diiod-4-hydroxybenzonitril (IOXYNIL); N,N-Dimethyl-N'-(4-isopropylphenyl)-harnstoff (ISOPROTURON); (2-Ethoxy-1-methyl-2-oxo-ethyl)-5-[2-chlor-4-(trifluormethyl)-phenoxy]-2-nitro benzoat (LACTOFEN); (2-Methyl-4-chlorphenoxy)-essigsäure (MCPA); (4-Chlor-2-methylphenoxy)-propionsäure (MCPP); N-Methyl-2-(1,3-benzthiazol-2-yloxy)-acetanilid (MEFENACET); 2-Chlor-N-(2,6-dimethylphenyl)-N-[(1H)-pyrazol-1-yl-methyl]-acetamid (METAZACHLOR); 2-

Ethyl-6-methyl-N-(1-methyl-2-methoxyethyl)-chloracetanilid (METOLACHLOR); 2-{{[({ 4-Methoxy-6-methyl-1,3,5-triazin-2-yl)-amino}-carbonyl)-amino]-sulfonyl}-benzoësäure oder deren Methylester (METSULFURON); S-Ethyl-N,N-hexamethylen-thiolcarbamat (MOLINATE); 1-(3-Trifluormethyl-phenyl)-4-methylamino-5-chlor-6-pyridazon (NORFLURAZON); 4-(Di-n-propylamino)-3,5-dinitrobenzolsulfonamid (ORYZALIN); (2-Chlor-4-trifluormethylphenyl)-(3-ethoxy-4-nitro-phenyl)-ether (OXYFLUORFEN); N-(1-Ethylpropyl)-3,4-dimethyl-2,6-dinitroanilin (PENDIMETHALIN); 3-(Ethoxycarbonylaminophenyl)-N-(3'-methylphenyl)-carbamat (PHENMEDIPHAM); 4-Amino-3,5,6-trichlorpyridin-2-carbonsäure (PICLORAM); α -Chlor-2',6'-diethyl-N-(2-proxyethyl)-acetanilid (PRETILACHLOR); 2-Chlor-N-isopropylacetanilid (PROPACHLOR); Isopropyl-N-phenylcarbamat (PROPHAM); 0-(6-Chlor-3-phenyl-pyridazin-4-yl)-S-octyl-thiocarbonat (PYRIDATE); 2-[4-(6-Chlor-chinoxalin-2-yl-oxy)-phenoxy]-propionsäure-ethylester (QUIZALOFOPETHYL); 2-[1-(Ethoxamino)-butyliden]-5-(2-ethylthiopropyl)-1,3-cyclohexadion (SETHOXYDIM); 2-Chlor-4,6-bis-(ethylamino)-1,3,5-triazin (SIMAZIN); 2,4-Bis-[N-ethylamino]-6-methylthio-1,3,5-triazin (SIMETRYNE); 4-Ethylamino-2-t-butylamino-6-methylthio-s-triazin (TERBUTRYNE); S-[(4-Chlorphenyl)methyl]-N,N-diethyl-thiocarbamat (THIOBENCARB); N,N-Diisopropyl-S-(2,3,3-trichlorallyl)-thiolcarbamat (TRIALLATE); 2,6-Dinitro-4-trifluormethyl-N,N-dipropyl-anilin (TRIFLURALIN); N-(2,4-Difluorphenyl-2-[3-trifluormethylphenoxy]-3-pyridincarboxamid (DIFLUFENICAN); N-(3,4-Dichlorphenyl)-propionanilid (PROPANIL); 3,5,6-Trichlor-2-pyridyloxyessigsäure (TRICLOPYR); 2-Methoxy-3,6-dichlorbenzoësäure bzw. deren Methylester (DICAMBA); 3-(Methoxycarbonylaminophenyl)-N-phenyl-carbamat (DESMEDIPHAM); 2-Ethyl-6'-methyl-N-ethoxymethyl-2-chloracetanilid (ACETOCHLOR); 2-Ethoxy-2-oxoethyl-5-(2-chlor-4-trifluormethylphenoxy)-2-nitrobenzoat (FLUOROGLYCOFEN); 5-(2-Chlor-6-fluor-4-trifluormethylphenoxy)-N-ethylsulfonyl-2-nitrobenzamid (HALOSAFEN); 2-[1-(Ethoximino)-propyl]-3-hydroxy-5-(2,4,6-trimethylphenyl)-2-cyclohexen-1-on (TRALKOXYDIM); N-[[[[(4,6-Dimethoxy-2-pyrimidinyl)-amino]-carbonyl]-amino]-sulfonyl]-N-methyl-methansulfonamid (AMIDOSULFURON); 2-(2-Methoxy-ethoxy)-N-[[[4,6-dimethoxy-1,3,5-triazin-2-yl)-amino]-carbonyl]-benzolsulfonamid (CINOSULFURON); 2-[[[[(4,6-Dimethoxy-2-pyrimidinyl)-amino]-carbonyl]-amino]-sulfonyl]-N,N-dimethyl-3-pyridincarboxamid (NICOSULFURON); Ethyl-5-[[[[(4,6-dimethoxy-2-pyrimidinyl)-amino]-carbonyl]-amino]-sulfonyl]-1-methyl-1H-pyrazol-4-carboxylat (PYRAZOSULFURON); 3-[[[[(4-Methoxy-6-methyl-1,3,5-triazin-2-yl)-amino]-carbonyl]-amino]-sulfonyl]-thiophen-2-carbonsäure oder deren Methylester (THIAMETURON, THIFENSULFURON); 2-(2-Chlorethoxy)-N-[[[4-methoxy-6-methyl-1,3,5-triazin-2-yl)-amino]-carbonyl]-benzolsulfonamid (TRIASULFURON); Methyl-2-[[[[(4-methoxy-6-methyl-1,3,5-triazin-2-yl)-methylamino]-carbonyl]-amino]-sulfonyl]-benzoat (TRIBENURON); S-(Phenylmethyl)-(1,2-dimethylpropyl)-ethyl-thiocarbamat (ESPROCARB); S-(Phenylmethyl)-dipropyl-thiocarbamat (PROSULFOCARB); 4-Ethylamino-2-t-butylamino-6-chlor-1,3,5-triazin (TERBUTYLAZIN); (2,3-Dihydro-3,3-dimethyl-5-benzofuranyl)-ethansulfonat(BENFURESATE); 2-[(2-Chlorphenyl)-methyl]-4,4-dimethyl-3-isoxazolidinon (CLOMAZONE, DIMETHAZONE); S,S-Dimethyl-2-difluormethyl-4-(2-methylpropyl)-6-trifluormethyl-3,5-pyridindicarbothioat (DITHIOPYR); N-[3-(1-Ethyl-1-methylpropyl)-isoxazol-5-yl]-2,6-dimethoxybenzamid (ISOXABEN); 3,7-Dichlor-8-chinolincarbonsäure (QUINCHLORAC); 7-Chlor-3-methyl-8-chinolincarbonsäure (QINMERAC) oder N-Phosphonomethylglycin Trimethylsulfoniumsalz (SULFOSATE) sind gegebenenfalls von Vorteil.

Auch eine Mischung mit anderen bekannten Wirkstoffen, wie Fungiziden, Insektiziden, Akariziden, Nematiziden, Schutzstoffen gegen Vogelfraß, Pflanzennährstoffen und Bodenstrukturverbesserungsmitteln ist möglich.

Die Wirkstoffe können als solche, in Form ihrer Formulierungen oder den daraus durch weiteres Verdünnen bereiteten Anwendungsformen, wie gebrauchsfertige Lösungen, Suspensionen, Emulsionen, Pulver, Pasten und Granulate angewandt werden. Die Anwendung geschieht in üblicher Weise, z. B. durch Gießen, Spritzen; Sprühen, Streuen.

Die erfindungsgemäßen Wirkstoffe können sowohl vor als auch nach dem Auflaufen der Pflanzen appliziert werden.

Sie können auch vor der Saat in den Boden eingearbeitet werden.

Die angewandte Wirkstoffmenge kann in einem größeren Bereich schwanken. Sie hängt im wesentlichen von der Art des gewünschten Effektes ab. Im allgemeinen liegen die Aufwandmengen zwischen 0,001 und 10 kg Wirkstoff pro Hektar Bodenfläche, vorzugsweise zwischen 0,005 und 5 kg pro Hektar.

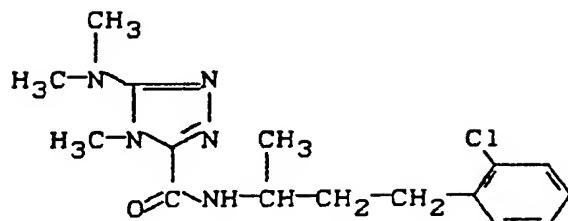
Die Herstellung und die Verwendung der erfindungsgemäßen Wirkstoffe geht aus den nachfolgenden Beispielen hervor.

Herstellungsbeispiele:

55

Beispiel 1:

5



10

(Verfahren a)

15 7,6 g (0,05 Mol) 1-Amino-2,2,3-trimethylguanidinium Hydrochlorid, 14,15 g (0,05 Mol) Oxalsäuremonoethylester-1-(2-chlorophenyl)-3-butylamid und 5,4 g (0,1 Mol) Natriummethylat werden in 200 ml Ethanol 4 Stunden bei Rückflußtemperatur gerührt, anschließend auf Raumtemperatur abgekühlt, filtriert, das Filtrat im Vakuum eingeengt, der Rückstand in Dichlormethan aufgenommen, dreimal mit jeweils 50 ml Wasser gewaschen, über Natriumsulfat getrocknet und im Vakuum eingeengt. Der Rückstand wird über 20 Kieselgel chromatographiert (Laufmittel: Cyclohexan/Essigester 1:1).

Man erhält 9,5 g (57 % der Theorie) 5-Dimethylamino-4-methyl-4H-1,2,4-triazol-3-ylcarbonsäure-1-(2-chlorophenyl)-3-butylamid als Öl.

¹H-NMR (CDCl₃/Tetramethylsilan):

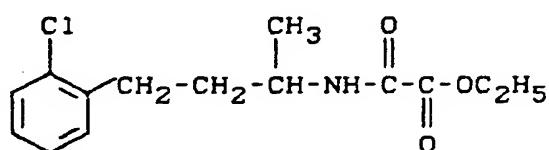
δ = 1,82-1,90; 2,76-2,85; 2,90; 3,80 ppm.

25

Herstellung der Ausgangsverbindung:

Beispiel II-1:

30



35

Zu 54,9 g (0,3 Mol) 1-(2-Chlorophenyl)-3-butylamin (vergleiche z. B. EP 6614) und 30,3 g (0,3 Mol) 40 Triethylamin in 400 ml Methylenchlorid gibt man bei Raumtemperatur tropfenweise unter Rühren und Eiskühlung 40,8 g (0,3 Mol) Oxalsäureethylesterchlorid zu, röhrt nach beendeter Zugabe 30 Minuten bei Raumtemperatur und filtriert anschließend ausgefallenes Triethylaminhydrochlorid ab. Das Filtrat wird dreimal mit jeweils 100 ml Wasser gewaschen, über Natriumsulfat getrocknet und im Vakuum eingeengt.

Man erhält 82,2 g (97 % der Theorie) Oxalsäuremonoethylester-1-(2-chlorophenyl)-3-butylamid als Öl.

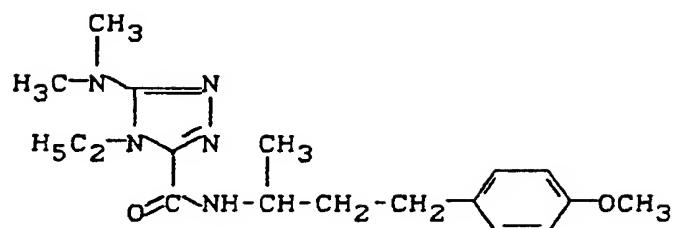
45 ¹H-NMR (CDCl₃/Tetramethylsilan):

δ = 1,25-1,28; 1,8-1,88; 4,02-4,12; 4,3-4,4; 7,1-7,25 ppm.

Beispiel 2:

50

55



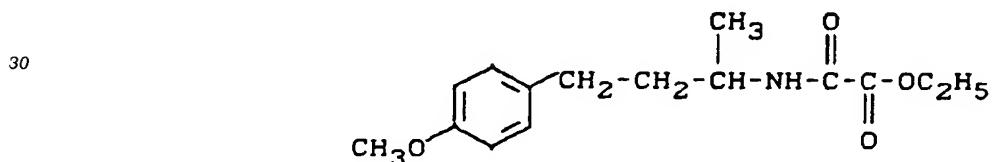
Verfahren (a)

15 8,33 g (0,05 Mol) 1-Amino-2,2-dimethyl-3-ethylguanidinium Hydrochlorid, 14,0 g (0,05 Mol) Oxalsäuremonoethylester-1-(4-methoxyphenyl)-3-butylamid und 5,4 g (0,1 Mol) Natriummethylat werden in 200 ml Ethanol 4 Stunden bei Rückflußtemperatur gerührt, anschließend auf Raumtemperatur abgekühlt, filtriert, das Filtrat im Vakuum eingeengt, der Rückstand in Dichlormethan aufgenommen, dreimal mit jeweils 50 ml Wasser gewaschen, über Natriumsulfat getrocknet und im Vakuum eingeengt. Der Rückstand wird 20 über Kieselgel chromatographiert (Laufmittel: Cyclohexan / Essigester 1:1).

Man erhält 10,4 g (60 % der Theorie) 5-Dimethylamino-4-ethyl-4H-1,2,4-triazol-3-ylcarbonsäure-1-(4-methoxyphenyl)-3-butylamid vom Schmelzpunkt Fp. 39-40 °C.

Herstellung der Ausgangsverbindung:

25 Beispiel II-2:



35

Zu 35,8 g (0,2 Mol) 1-(4-Methoxyphenyl)-3-butylamin (vergleiche z. B. EP 6614) und 20,2 g (0,3 Mol) Triethylamin in 300 ml Methylenchlorid gibt man bei Raumtemperatur tropfenweise unter Rühren und Eiskühlung 27,2 g (0,2 Mol) Oxalsäureethylesterchlorid zu, röhrt nach beendeter Zugabe 30 Minuten bei 40 Raumtemperatur und filtriert anschließend ausgefallenes Triethylaminhydrochlorid ab. Das Filtrat wird dreimal mit jeweils 100 ml Wasser gewaschen, über Natriumsulfat getrocknet und im Vakuum eingeengt.

Man erhält 54,3 g (97 % der Theorie) Oxalsäuremonoethylester-1-(4-methoxyphenyl)-3-butylamid als Öl.

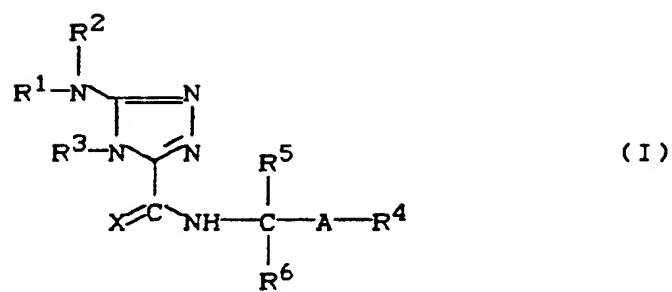
¹H-NMR (CDCl₃/Tetramethylsilan):

45 δ = 1,21-1,23; 1,78-1,83; 3,88; 4,3-4,38; 7,05-7,10 ppm.

In entsprechender Weise und gemäß den allgemeinen Angaben zur Herstellung erhält man die folgenden substituierten Triazole der allgemeinen Formel (I):

50

55



| Bsp. -Nr. | R^1 | R^2 | R^3 | R^4 | R^5 | R^6 | A | X | physikalische Eigenschaften | | |
|-----------|----------------------------|---------------|---------------|--------------|--------------|---------------|---------------------------------|---|--|----|----|
| | | | | | | | | | 55 | 50 | 45 |
| 3 | $-\text{N}(\text{CH}_3)_2$ | CH_3 | CH_3 | | H | CH_3 | $-\text{CH}_2-\text{CH}_2-$ | 0 | $^1\text{H-NMR}^*$); 1,22-1,25; 1,9- 2,0; 2,9; 3,8 | 10 | 5 |
| 4 | $-\text{N}(\text{CH}_3)_2$ | CH_3 | CH_3 | | H | CH_3 | $-\text{CH}_2-\text{CH}_2-$ | 0 | $^1\text{H-NMR}^*$); 1,25-1,27; 2,3; 2,9; 3,8; 7,08; 7,32-7,36 | 15 | 10 |
| 5 | $-\text{N}(\text{CH}_3)_2$ | CH_3 | CH_3 | | H | CH_3 | $-\text{CH}_2-\text{CH}_2-$ | 0 | $^1\text{H-NMR}^*$); 1,25-1,30; 2,6- 2,7; 2,9; 3,8; 7,56-7,60 | 20 | 15 |
| 6 | $-\text{N}(\text{CH}_3)_2$ | CH_3 | CH_3 | | H | CH_3 | $-\text{CH}_2-\text{CH}_2-$ | 0 | $^1\text{H-NMR}^*$); 1,25-1,28; 2,6- 2,7; 2,9-3,8; 4,1-4,2 | 25 | 20 |
| 7 | $-\text{N}(\text{CH}_3)_2$ | CH_3 | CH_3 | | H | CH_3 | $-\text{CH}_2-\text{CH}_2-$ | 0 | $^1\text{H-NMR}^*$); 0,85-0,9; 1,23-1,27; 2,3; 2,9; 3,8 | 30 | 25 |
| 8 | $-\text{N}(\text{CH}_3)_2$ | CH_3 | CH_3 | | H | CH_3 | $-\text{CH}_2-\text{CH}_2-$ | 0 | $^1\text{H-NMR}^*$); 1,25-1,28; 1,9-2,05; 2,9; 3,8; 7,1; 7,25 | 35 | 30 |

55 50 45 40 35 30 25 20 15 10 5

| Bsp. -Nr. | -Nr. | -N ₂ ^{R¹} | -N ₂ ^{R²} | R ³ | R ⁴ | R ⁵ | R ⁶ | A | X | physikalische Eigenschaften | |
|-----------|------|--|--|--|----------------|-----------------|---|---|---|--------------------------------|---|
| | | | | | | | | | | 1 | 2 |
| 9 | | -CH ₃ | CH ₃ | —C ₆ H ₅ | H | CH ₃ | -CH ₂ -CH ₂ - CH ₃ | 0 | 0,85-0,9; 2,4- 2,5; 2,9; 3,8 7,1-7,3 | | |
| 10 | | -CH ₃ | CH ₃ | —C ₆ H ₅ -OCH ₃ | H | CH ₃ | -CH ₂ -CH ₂ - CH ₃ | 0 | 1,25-1,27; 2,3- 2,4; 2,9; 3,75; 3,8 | | |
| 11 | | -CH ₃ | CH ₃ | —C ₆ H ₅ -CF ₃ | H | CH ₃ | -CH ₂ -CH ₂ - CH ₃ | 0 | 0,85-0,9; 1,95- 2,05; 2,9; 3,8; 7,3-7,45 | | |
| 12 | | -CH ₃ | CH ₃ | —C ₆ H ₅ -CH ₃ | H | CH ₃ | -CH ₂ -CH ₂ - CH ₃ | 0 | 0,85-0,9; 2,2; 2,9; 3,8; 7,8-7,85 | | |
| 13 | | -CH ₃ | CH ₃ | —C ₆ H ₅ -CF ₃ | H | CH ₃ | -CH ₂ -CH ₂ - CH ₃ | 0 | 1,29-1,32; 1,85-1,95; 2,9; 3,8; 4,12-4,22 | | |
| 14 | | -CH ₃ | CH ₃ | —C ₆ H ₅ -OC ₂ H ₅ | H | CH ₃ | -CH ₂ -CH ₂ - CH ₃ | 0 | 1,25-1,27; 1,38-1,42; 2,6- 2,67; 2,9; 3,8 | | |

| Bsp. -Nr. | R^1 | R^3 | R^4 | R^5 | R^6 | A | X | physikalische Eigenschaften |
|-----------|----------------------------|------------------------|--|--------------|---------------|---|---|--|
| 15 | $-\text{N}(\text{CH}_3)_2$ | CH_3 | C_6H_5 | H | H | $-\text{CH}_2-\text{N}(\text{C}_2\text{H}_5)_2^-$ | 0 | Fp.: 95-96°C |
| 16 | $-\text{N}(\text{CH}_3)_2$ | CH_3 | $\text{C}_6\text{H}_5-\text{iC}_3\text{H}_7$ | H | H | $-\text{CH}(\text{CH}_3)-\text{CH}_2^-$ | 0 | $^1\text{H-NMR}^*):$ 0,95-0,97; 1,22-1,25; 2,4- 2,5; 2,9; 3,8 |
| 17 | $-\text{N}(\text{CH}_3)_2$ | CH_3 | $\text{C}_6\text{H}_5-\text{OCH}_3$ | H | CH_3 | $-\text{CH}_2-\text{O}-$ | 0 | $^1\text{H-NMR}^*):$ 1,4-1,43; 2,9; 3,75; 3,8; 3,95-4,03 |
| 18 | $-\text{N}(\text{CH}_3)_2$ | CH_3 | $\text{C}_6\text{H}_5-\text{CH}_3$ | H | CH_3 | $-\text{CH}_2-\text{O}-$ | 0 | $^1\text{H-NMR}^*):$ 1,4-1,43; 2,28; 2,9; 3,8; 3,95-4,05 |
| 19 | $-\text{N}(\text{CH}_3)_2$ | CH_3 | $\text{C}_6\text{H}_5-\text{C}_2\text{H}_5$ | H | CH_3 | $-\text{CH}_2-\text{CH}_2^-$ | 0 | $^1\text{H-NMR}^*):$ 1,2-1,25; 1,26- 1,29; 1,8-1,9; 2,9; 3,8 |
| 20 | $-\text{N}(\text{CH}_3)_2$ | C_2H_5 | $\text{C}_6\text{H}_5-\text{iC}_3\text{H}_7$ | H | H | $-\text{CH}(\text{CH}_3)-\text{CH}_2^-$ | 0 | $^1\text{H-NMR}^*):$ 0,95-0,98; 1,2- 1,25; 1,4-1,45; 2,9; 4,25-4,32 |

55 45 40 35 30 25 20 15 10 5

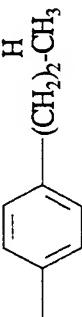
| Bsp. -Nr. | -N ₂ ^{R¹} | R ³ | R ⁴ | R ⁵ | R ⁶ | A | X | physikalische Eigenschaften | |
|-----------|--|-------------------------------|--------------------------------|----------------|-----------------|---|---|--|--|
| | | | | | | | | 1 ¹ -H-NMR*): | 1 ¹ -H-NMR*): |
| 21 | -N ₂ ^{CH₃} | C ₂ H ₅ | CF ₃ | H | CH ₃ | -CH-CH ₂ - CH ₃ | 0 | 1,25-1,28; 2,36-2,45; 2,9; 4,25-4,35 | 1,28-1,32; 1,4-1,48; 2,7-2,8; 2,9 |
| 22 | -N ₂ ^{CH₃} | C ₂ H ₅ | CF ₃ | H | CH ₃ | -CH ₂ -CH ₂ - | 0 | 1 ¹ -H-NMR*): | 1,2-1,23; 1,26-1,3; 2,8; 3,75 |
| 23 | -N ₂ ^{iC₃H₇} | CH ₃ | CF ₃ | H | CH ₃ | -CH ₂ -CH ₂ - | 0 | 1 ¹ -H-NMR*): | 1,2-1,23; 1,43; 2,7; 3,75; 3,95-4,05 |
| 24 | -N ₂ ^{iC₃H₇} | CH ₃ | OC ₂ H ₅ | H | CH ₃ | -CH ₂ -CH ₂ - | 0 | 1 ¹ -H-NMR*): | 0,9-0,93; 2,9; 3,8; 7,55-7,6 |
| 25 | -N ₂ ^{CH₃} | CH ₃ | C ₁ | H | H | -CH-CH ₂ - CH ₃ | 0 | 1 ¹ -H-NMR*): | 1,85; 2,23- 2,5; 2,9; 3,8; 7,18-7,32 |
| 26 | -N ₂ ^{CH₃} | CH ₃ | C ₁ | CN | CH ₃ | -CH ₂ -CH ₂ - | 0 | 1 ¹ -H-NMR*): | 1,85; 2,23- 2,5; 2,9; 3,8; 7,18-7,32 |

55 50 45 40 35 30 25 20 15 10 5

| Bsp. -Nr. | N^{R^1} | R^3 | R^4 | R^5 | R^6 | A | X | physikalische Eigenschaften |
|-----------|---------------------------|---------------|--------------|--------------|---------------|------------------------------|---|---|
| 27 | $-\text{N}^{\text{CH}_3}$ | CH_3 | | CN | CH_3 | $-\text{CH}_2-\text{CH}_2^-$ | 0 | $\text{Fp. : 97-99}^\circ\text{C}$ |
| 28 | $-\text{N}^{\text{CH}_3}$ | CH_3 | | H | CH_3 | $-\text{CH}_2-\text{CH}_2^-$ | 0 | ${}^1\text{H-NMR}^*: 1,25-1,28; 2,62-2,7; 2,9; 3,8; 4,08-4,2$ |
| 29 | $-\text{N}^{\text{CH}_3}$ | CH_3 | | | CH_3 | $-\text{CH}_2-\text{CH}_2^-$ | 0 | $\text{Fp. : 111-113}^\circ\text{C}$ |
| 30 | $-\text{N}^{\text{CH}_3}$ | CH_3 | | | CH_3 | $-\text{C}\equiv\text{C}-$ | 0 | ${}^1\text{H-NMR}^*: 1,82; 2,9; 3,79$ |
| 31 | $-\text{N}^{\text{CH}_3}$ | CH_3 | | | CH_3 | $-\text{CH}_2-\text{CH}_2^-$ | 0 | ${}^1\text{H-NMR}^*: 1,46; 2,9; 3,76$ |
| 32 | $-\text{N}^{\text{CH}_3}$ | CH_3 | | | CH_3 | $-\text{CH}_2-\text{CH}_2^-$ | 0 | ${}^1\text{H-NMR}^*: 1,47; 2,9; 3,77$ |

50 45 40 35 30 25 20 15 10 5

| Bsp. -Nr. | $-\text{N}^{\text{R}1}\text{R}2$ | $\text{R}3$ | $\text{R}4$ | $\text{R}5$ | $\text{R}6$ | A | X | physikalische Eigenschaften |
|-----------|--------------------------------------|---------------|---|---------------|-------------------------|------------------------------|---|--|
| 33 | $-\text{N}^{\text{CH}_3}\text{CH}_3$ | CH_3 | $-\text{C}_6\text{H}_5$ | H | iC_4H_9 | $-\text{CH}_2\text{-CH}_2^-$ | 0 | $^1\text{H-NMR}^*):$ 0,9-0,95; 1,15- 1,7; 2,9; 3,8; 4,02-4,12; 7,03-7,08 |
| 34 | $-\text{N}^{\text{CH}_3}\text{CH}_3$ | CH_3 | $-\text{C}_6\text{H}_5\text{-Cl}$ | CH_3 | CH_3 | $-\text{C}\equiv\text{C}-$ | 0 | Fp. 181°C |
| 35 | $-\text{N}^{\text{CH}_3}\text{CH}_3$ | CH_3 | $-\text{C}_6\text{H}_5\text{-CH}_3$ | CH_3 | CH_3 | $-\text{CH}_2\text{-CH}_2^-$ | 0 | $^1\text{H-NMR}^*):$ 1,47; 2,29; 2,89; 3,76 |
| 36 | $-\text{N}^{\text{CH}_3}\text{CH}_3$ | CH_3 | $-\text{C}_6\text{H}_5\text{-C}(\text{CH}_3)_3$ | CH_3 | CH_3 | $-\text{CH}_2\text{-CH}_2^-$ | 0 | $^1\text{H-NMR}^*):$ 1,29; 1,47; 2,89; 3,77 |
| 37 | $-\text{N}^{\text{CH}_3}\text{CH}_3$ | CH_3 | Cl | H | CH_3 | $-\text{CH}_2\text{-O}-$ | 0 | $^1\text{H-NMR}^*):$ 1,40-1,43; 2,9; 3,8; 4,0-4,03; 4,45-4,55 |

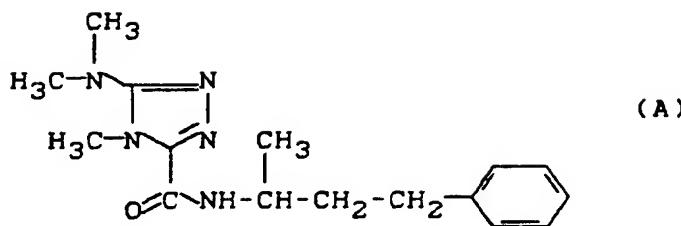
| Bsp.-Nr. | $\begin{array}{c} \text{R}^1 \\ \diagup \\ \text{—N} \\ \diagdown \\ \text{R}^2 \end{array}$ | R^3 | R^4 | R^5 | R^6 | A | X | X | physikalische Eigenschaften | |
|----------|--|---------------|--|--------------|---------------|------------------------------------|---|-----------------------|--|------------------------------------|
| | | | | | | | | | CH_3 | $\text{—CH}_2\text{—CH}_2\text{—}$ |
| 38 | $\begin{array}{c} \text{CH}_3 \\ \diagup \\ \text{—N} \\ \diagdown \\ \text{CH}_3 \end{array}$ | CH_3 | $\text{—CH}_2\text{—}$  | H | CH_3 | $\text{—CH}_2\text{—CH}_2\text{—}$ | O | $^1\text{H-NMR}^*)$: | 0,9-0,95; 1,25-1,3; 1,65-1,75; 2,5-2,55; 2,6-2,7; 3,03; 3,85; 4,1-4,2 | |
| 39 | $\begin{array}{c} \text{CH}_3 \\ \diagup \\ \text{—N} \\ \diagdown \\ \text{CH}_3 \end{array}$ | CH_3 | F | H | CH_3 | $\text{—CH}_2\text{—CH}_2\text{—}$ | O | $^1\text{H-NMR}^*)$: | 1,17-1,2; 2,5-2,6; 2,85; 3,73 | |

^{NMR}

*) Die $^1\text{H-NMR}$ -Spektren wurden in Deuterochloroform (CDCl_3) oder Hexadeuteriodimethylsulfoxid (DMSO-d_6) mit Tetramethylsilan (TMS) als innerem Standard aufgenommen. Angegeben ist die chemische Verschiebung als δ -Wert in ppm.

55 Anwendungsbeispiele:

In dem folgenden Anwendungsbeispiel wurde die nachstehend aufgeführte Verbindung als Vergleichsstanz eingesetzt:



10

5-Dimethylamino-4-methyl-3-(4-phenylbut-2-ylaminocarbonyl)-1,2,4-triazol (bekannt aus DE 38 09 053).

Beispiel A:

15

Post-emergence-Test

Lösungsmittel: 5 Gewichtsteile Aceton

Emulgator: 1 Gewichtsteil Alkylarylpolyglykolether

20 Zur Herstellung einer zweckmäßigen Wirkstoffzubereitung vermischt man 1 Gewichtsteil Wirkstoff mit der angegebenen Menge Lösungsmittel, gibt die angegebene Menge Emulgator zu und verdünnt das Konzentrat mit Wasser auf die gewünschte Konzentration.

Mit der Wirkstoffzubereitung spritzt man Testpflanzen, welche eine Höhe von 5 - 15 cm haben, so, daß die jeweils gewünschten Wirkstoffmengen pro Flächeneinheit ausgebracht werden.

25 Nach drei Wochen wird der Schädigungsgrad der Pflanzen bonitiert in % Schädigung im Vergleich zur Entwicklung der unbehandelten Kontrolle.

Es bedeuten:

0 % = keine Wirkung (wie unbehandelte Kontrolle)

100 % = totale Vernichtung

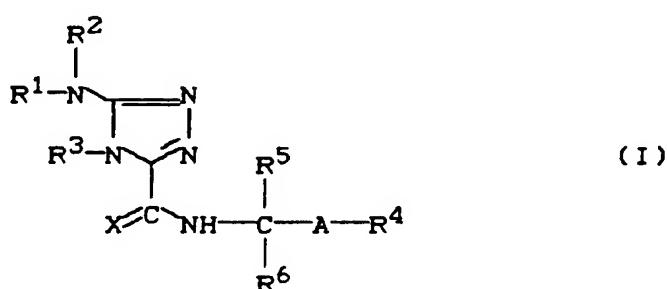
30 Eine deutliche Überlegenheit in der Wirksamkeit ebenso wie in der Nutzpflanzenselektivität gegenüber dem Stand der Technik zeigen in diesem Test z.B. die Verbindungen gemäß folgender Herstellungsbeispiele: 3, 4, 5, 6, 7, 9, 11, 12, 13, 14 und 19.

Patentansprüche

35

1. Substituierte Triazole der allgemeinen Formel (I)

40



45

50 bei welchen

R¹ für Alkyl steht,

R² für Alkyl steht,

R³ für Alkyl steht,

R⁴ für jeweils gegebenenfalls substituiertes Cycloalkyl oder Aryl steht,

55 R⁵ entweder für Wasserstoff, Alkyl oder Cyano steht und

R⁶ für Wasserstoff oder Alkyl steht oder

R⁵ und R⁶ gemeinsam für zweifach verknüpftes Alkandiyl stehen,

A für einen der Reste -CH₂-CH₂-; -CH(CH₃)-CH₂-; -CH₂-O-; -CH₂-S-; -CH₂-N(R⁷)-;

-CH = CH- oder -C≡C-steht und
 X für Sauerstoff oder Schwefel steht, wobei
 R⁷ für Wasserstoff, Alkyl oder Alkanoyl steht, wobei jedoch die Verbindung 5-Dimethylamino-4-methyl-3-(4-phenylbut-2-ylaminocarbonyl)-1,2,4-triazol ausgenommen ist.

5

2. Substituierte Triazole der allgemeinen Formel (I) gemäß Anspruch 1, bei welchen

R¹ für geradkettiges oder verzweigtes Alkyl mit 1 bis 6 Kohlenstoffatomen steht,
 R² für geradkettiges oder verzweigtes Alkyl mit 1 bis 6 Kohlenstoffatomen steht,
 10 R³ für geradkettiges oder verzweigtes Alkyl mit 1 bis 6 Kohlenstoffatomen steht,
 R⁴ für gegebenenfalls einfach oder mehrfach, gleich oder verschieden substituiertes Cycloalkyl mit 3 bis 7 Kohlenstoffatomen steht, wobei als Substituenten infrage kommen: Halogen, Cyano, jeweils geradkettiges oder verzweigtes Alkyl mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen sowie jeweils geradkettiges oder verzweigtes Halogenalkyl mit jeweils 1 bis 4 Kohlenstoffatomen und 1 bis 9 gleichen oder verschiedenen Halogenatomen;
 15 außerdem für gegebenenfalls einfach oder mehrfach, gleich oder verschieden substituiertes Aryl mit 6 oder 10 Kohlenstoffatomen steht, wobei als Substituenten infrage kommen:

20 Halogen, Cyano, Nitro, jeweils geradkettiges oder verzweigtes Alkyl, Alkoxy oder Alkylthio mit jeweils 1 bis 4 Kohlenstoffatomen, jeweils geradkettiges oder verzweigtes Halogenalkyl, Halogenalkoxy, Halogenalkylthio mit jeweils 1 bis 4 Kohlenstoffatomen und 1 bis 9 gleichen oder verschiedenen Halogenatomen, jeweils geradkettiges oder verzweigtes Alkoxy carbonyl oder Alkoxyminoalkyl mit jeweils 1 bis 4 Kohlenstoffatomen in den einzelnen Alkylteilen, Dialkylamino mit jeweils 1 bis 4 Kohlenstoffatomen in den einzelnen geradkettigen oder verzweigten Alkylteilen, N-Alkanoyl amino mit 1 bis 5 Kohlenstoffatomen im geradkettigen oder verzweigten Alkanoylteil, gegebenenfalls einfach oder mehrfach, gleich oder verschieden durch Halogen substituiertes, zweifach verknüpftes Dioxyalkylen mit 1 bis 3 Kohlenstoffatomen sowie gegebenenfalls einfach oder mehrfach, gleich oder verschieden durch Halogen und/oder geradkettiges oder verzweigtes Alkyl mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen substituiertes Phenyl, Phenoxy, α -Naphthyl oder β -Naphthyl;

25 R⁵ entweder für Wasserstoff, für geradkettiges oder verzweigtes Alkyl mit 1 bis 6 Kohlenstoffatomen oder für Cyano steht und

30 R⁶ für Wasserstoff oder für geradkettiges oder verzweigtes Alkyl mit 1 bis 6 Kohlenstoffatomen steht oder

35 R⁵ und R⁶ gemeinsam für zweifach verknüpftes Alkandiyl mit 2 bis 9 Kohlenstoffatomen stehen,
 A für einen Rest der Formel -CH₂-CH₂-; -CH(CH₃)-CH₂-; -CH₂-O-; -CH₂-S-; -CH₂-N(R⁷)-; -CH = CH- oder -C≡C- steht und

40 X für Sauerstoff oder Schwefel steht, wobei
 R⁷ für Wasserstoff, für geradkettiges oder verzweigtes Alkyl mit 1 bis 6 Kohlenstoffatomen oder für geradkettiges oder verzweigtes Alkanoyl mit 1 bis 7 Kohlenstoffatomen steht,
 45 wobei jedoch die Verbindung 5-Dimethylamino-4-methyl-3-(4-phenylbut-2-ylaminocarbonyl)-1,2,4-triazol ausgenommen ist.

3. Substituierte Triazole der allgemeinen Formel (I) gemäß Anspruch 1, bei welchen

R¹ für geradkettiges oder verzweigtes Alkyl mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen steht,
 R² für geradkettiges oder verzweigtes Alkyl mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen steht,
 50 R³ für geradkettiges oder verzweigtes Alkyl mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen steht,
 R⁴ für gegebenenfalls ein- bis fünfach, gleich oder verschieden substituiertes Cyclopropyl, Cyclobutyl, Cyclopentyl oder Cyclohexyl steht, wobei als Substituenten jeweils infrage kommen:
 Fluor, Chlor, Brom, Cyano, Methyl, Ethyl, n- oder i-Propyl, Chlormethyl, Dichlormethyl, Trichlormethyl, Difluormethyl oder Trifluormethyl;
 55 außerdem für gegebenenfalls ein- bis dreifach, gleich oder verschieden substituiertes Phenyl, α -Naphthyl, β -Naphthyl oder Indanyl, steht, wobei als Substitu-

enten jeweils infrage kommen:

Fluor, Chlor, Brom, Cyano, Nitro, Methyl, Ethyl, n- oder i-Propyl, n-, i-, s- oder t-Butyl, Methoxy, Ethoxy, n- oder i-Propoxy, n-, i-, s- oder t-Butoxy, Methylthio, Ethylthio, Difluormethyl, Trifluormethyl, Difluormethoxy, Trifluormethoxy, Difluormethylthio, Trifluormethylthio, Dimethylamino, Diethylamino, N-Acetamido, Dioxymethylen, Difluordioxymethylen, Dioxyethylen, Trifluordioxymethylen, Tetrafluordioxymethylen, Methoxycarbonyl, Ethoxycarbonyl, Propoxycarbonyl, Methoximinomethyl, Methoximinoethyl, Ethoximinomethyl, Ethoximinoethyl oder jeweils gegebenenfalls ein- bis dreifach, gleich oder verschieden durch Fluor, Chlor, Brom, Methyl, Ethyl, Methoxy und/oder

5 Ethoxy substituiertes Phenyl, Phenoxy, α -Naphthyl oder β -Naphthyl, entweder für Wasserstoff, für geradkettiges oder verzweigtes Alkyl mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen oder für Cyano steht und

10 R⁵ R⁶ für Wasserstoff oder für geradkettiges oder verzweigtes Alkyl mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen steht oder

15 R⁵ und R⁶ gemeinsam für zweifach verknüpftes Alkandiyl mit 4 bis 9 Kohlenstoffatomen stehen, A für einen der Reste -CH₂-CH₂-; -CH(CH₃)-CH₂-; -CH₂-O-; -CH₂-S-; -CH₂-N(R⁷)-; -CH=CH- oder -C≡C- steht und

X für Sauerstoff oder Schwefel steht, wobei

20 R⁷ R⁷ für Wasserstoff, für geradkettiges oder verzweigtes Alkyl mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen oder für geradkettiges oder verzweigtes Alkanoyl mit 1 bis 5 Kohlenstoffatomen steht,

wobei jedoch die Verbindung 5-Dimethylamino-4-methyl-3-(4-phenylbut-2-ylaminocarbonyl)-1,2,4-triazol ausgenommen ist.

25 4. Substituierte Triazole der allgemeinen Formel (I) gemäß Anspruch 1, bei welchen

R¹ für Methyl steht,

R² für Methyl oder Ethyl steht,

R³ für Methyl oder Ethyl steht,

30 R⁴ für gegebenenfalls einfach oder zweifach, gleich oder verschieden durch Methyl, Ethyl und/oder Trifluormethyl substituiertes Cyclohexyl oder für gegebenenfalls ein- bis dreifach, gleich oder verschieden substituiertes Phenyl steht, wobei als Substituenten infrage kommen:

35 Fluor, Chlor, Brom, Cyano, Nitro, Methyl, Ethyl, n- oder i-Propyl, n-, i-, s- oder t-Butyl, Methoxy, Ethoxy, n- oder i-Propoxy, n-, i-, s- oder t-Butoxy, Methylthio, Ethylthio, Difluormethyl, Trifluormethyl, Difluormethoxy, Trifluormethoxy, Difluormethylthio, Trifluormethylthio, Dimethylamino, Diethylamino, N-Acetamido, Dioxymethylen, Difluordioxymethylen, Dioxyethylen, Trifluordioxymethylen, Tetrafluordioxymethylen, Methoxycarbonyl, Ethoxycarbonyl, Propoxycarbonyl, Methoximinomethyl, Methoximinoethyl, Ethoximinomethyl, Ethoximinoethyl oder jeweils gegebenenfalls ein- bis dreifach, gleich oder verschieden durch Fluor, Chlor, Brom, Methyl, Ethyl, Methoxy und/oder Ethoxy substituiertes Phenyl, Phenoxy, α -Naphthyl oder β -Naphthyl,

40 R⁵ für Wasserstoff, Methyl, Ethyl oder Cyano steht,

R⁶ für Methyl, Ethyl, n- oder i-Propyl steht,

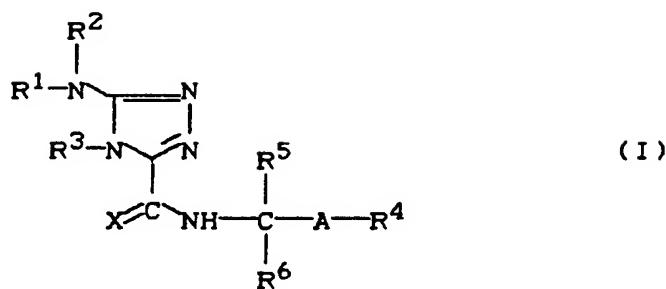
45 A für einen der Reste -CH₂-CH₂-; -CH(CH₃)-CH₂-; -CH₂-O-; -CH₂-S-; -CH₂-N(R⁷)-; -CH=CH- oder -C≡C- steht und

X für Sauerstoff steht, wobei

R⁷ für Wasserstoff, Methyl, Ethyl, n- oder i-Propyl, Acetyl oder Propionyl steht,

wobei jedoch die Verbindung 5-Dimethylamino-4-methyl-3-(4-phenylbut-2-ylaminocarbonyl)-1,2,4-triazol ausgenommen ist.

50 5. Verfahren zur Herstellung von substituierten Triazolen der allgemeinen Formel (I) gemäß Anspruch 1



bei welchen

15 R¹ für Alkyl steht,
 R² für Alkyl steht,
 R³ für Alkyl steht,
 R⁴ für jeweils gegebenenfalls substituiertes Cycloalkyl oder Aryl steht,
 R⁵ entweder für Wasserstoff, Alkyl oder Cyano steht und
 R⁶ für Wasserstoff oder Alkyl steht oder
 R⁵ und R⁶ gemeinsam für zweifach verknüpftes Alkandiyl stehen,
 A für einen der Reste -CH₂-CH₂-; -CH(CH₃)-CH₂-; -CH₂-O-; CH₂-S-; -CH₂-N(R⁷)-; -CH=CH- oder -C≡C- steht und
 X für Sauerstoff oder Schwefel steht, wobei
 R⁷ für Wasserstoff, Alkyl oder Alkanoyl steht,
 25 wobei jedoch die Verbindung 5-Dimethylamino-4-methyl-3-(4-phenylbut-2-ylaminocarbonyl)-1,2,4-triazol ausgenommen ist,

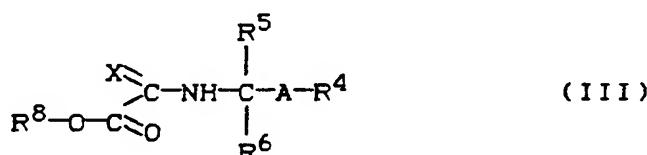
dadurch gekennzeichnet, daß man

30 a) Aminoguanidine der Formel (II),



in welcher

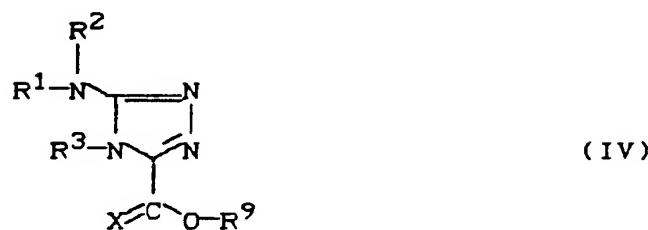
40 R¹, R² und R³ die oben angegebene Bedeutung haben,
 oder deren Säureadditionssalze mit (Thio)Oxalesteramiden der Formel (III),



in welcher

50 R⁴, R⁵, R⁶, X und A die oben angegebene Bedeutung haben und
 R⁸ für Alkyl steht,
 gegebenenfalls in Gegenwart eines Verdünnungsmittels und gegebenenfalls in Gegenwart eines Reaktionshilfsmittels umsetzt,

55 oder daß man
 b) substituierte Triazolyl(thio)carbonsäureester der Formel (IV),



10

in welcher
 R^1 , R^2 , R^3 und X die oben angegebene Bedeutung haben und
 R^9 für Alkyl steht,
mit Aminen der Formel (V),

15



20

in welcher
 R^4 , R^5 , R^6 und A die oben angegebene Bedeutung haben,
gegebenenfalls in Gegenwart eines Verdünnungsmittels umsetzt.

25

6. Herbizide Mittel, gekennzeichnet durch einen Gehalt an mindestens einem substituierten Triazol der Formel (I) gemäß den Ansprüchen 1 bis 5.
- 30 7. Verfahren zur Bekämpfung von unerwünschten Pflanzen, dadurch gekennzeichnet, daß man substituierte Triazole der Formel (I) gemäß den Ansprüchen 1 bis 5 auf unerwünschte Pflanzen und/oder ihren Lebensraum einwirken läßt.
- 35 8. Verwendung von substituierten Triazolen der Formel (I) gemäß den Ansprüchen 1 bis 5 zur Bekämpfung von unerwünschten Pflanzen.
9. Verfahren zur Herstellung von herbiziden Mitteln, dadurch gekennzeichnet, daß man substituierte Triazole der Formel (I) gemäß den Ansprüchen 1 bis 5 mit Streckmitteln und/oder oberflächenaktiven Substanzen vermischt.

40

45

50

55



Europäisches
Patentamt

EUROPÄISCHER RECHERCHENBERICHT

Nummer der Anmeldung

EP 92 11 1515

| EINSCHLÄGIGE DOKUMENTE | | | |
|--|--|--|---|
| Kategorie | Kennzeichnung des Dokuments mit Angabe, soweit erforderlich, der maßgeblichen Teile | Betreff Anspruch | KLASSIFIKATION DER ANMELDUNG (Int. Cl. 5) |
| D, X | EP-A-0 332 991 (BAYER AG) * insgesamt, und insbesondere Seite 19, Beispiel 22* ----- | 1-9 | C07D249/14 A01N43/653 |
| RECHERCHIERTE SACHGEBiete (Int. Cl. 5) | | | |
| C07D | | | |
| Der vorliegende Recherchenbericht wurde für alle Patentansprüche erstellt | | | |
| Recherchesort | Abgeschl. datum der Recherche | Prüfer | |
| DEN HAAG | 12 OKTOBER 1992 | ALLARD M.S. | |
| KATEGORIE DER GENANNTEN DOKUMENTE | | T : der Erfindung zugrunde liegende Theorien oder Grundsätze E : älteres Patentdokument, das jedoch erst am oder nach dem Anmeldeatum veröffentlicht worden ist D : in der Anmeldung angeführtes Dokument L : aus andern Gründen angeführtes Dokument & : Mitglied der gleichen Patentfamilie, übereinstimmendes Dokument | |
| X : von besonderer Bedeutung allein betrachtet Y : von besonderer Bedeutung in Verbindung mit einer anderen Veröffentlichung derselben Kategorie A : technologischer Hintergrund O : nichtschriftliche Offenbarung P : Zwischenliteratur | | | |